

①⑨ RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE
PARIS

①① N° de publication : 2 775 593

(à n'utiliser que pour les
commandes de reproduction)

②① N° d'enregistrement national : 98 02838

⑤① Int Cl⁶ : A 61 K 7/043, A 61 K 7/025, C 08 L 75/04, C 08 K 5/
11, 5/12

⑫

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

②② Date de dépôt : 09.03.98.

③③ Priorité :

④③ Date de mise à la disposition du public de la
demande : 10.09.99 Bulletin 99/36.

⑤⑥ Liste des documents cités dans le rapport de
recherche préliminaire : *Se reporter à la fin du
présent fascicule*

⑥⑥ Références à d'autres documents nationaux
apparentés :

⑦① Demandeur(s) : L'OREAL Société anonyme — FR.

⑦② Inventeur(s) : DE LA POTERIE VALERIE.

⑦③ Titulaire(s) :

⑦④ Mandataire(s) : L'OREAL.

⑤④ COMPOSITION FILMOGENE COMPRENANT UN POLYURETHANE EN DISPERSION AQUEUSE ET UN AGENT
PLASTIFIANT.

⑤⑦ L'invention a pour objet une composition filmogène
comprenant au moins une dispersion aqueuse de particules
de polyuréthane et au moins un agent plastifiant choisi parmi
les solvants présentant un paramètre moyen de solubilité
dH de HANSEN à 25°C tel que $dH \leq 8 (J/cm^3)^{1/2}$, et son utilisation
dans un procédé de maquillage des matières kératiniques et/ ou des muqueuses.

L'invention a également pour objet l'utilisation de ladite
dispersion aqueuse de particules de polyuréthane et dudit
agent plastifiant pour l'obtention d'une composition filmogène
présentant une viscosité stable dans le temps et/ ou ne
prenant pas en masse dans le temps.

FR 2 775 593 - A1



- L'invention a pour objet une composition filmogène, notamment topique, comprenant un polyuréthane filmogène destinée en particulier aux domaines cosmétique et/ou dermatologique. L'invention se rapporte aussi à une utilisation de cette composition pour le traitement et le soin des matières kératiniques telles que la peau, les ongles, les cils, les sourcils, les cheveux ou des muqueuses telles que les lèvres et l'intérieur des paupières. Elle est destinée plus spécialement au traitement et/ou au soin des ongles.
- Il est connu des demandes EP-A-143480, EP-A-648485 et EP-A-EP-A-775483 des compositions de maquillage des ongles et des lèvres comprenant comme polymère filmogène un polyuréthane en dispersion aqueuse.
- Le film déposé sur l'ongle ou les lèvres après l'application d'une composition filmogène doit présenter une bonne flexibilité pour éviter son craquèlement ou son écaillage. Dans ce but, il est d'usage courant d'ajouter dans la composition filmogène des agents plastifiants permettant de régler la flexibilité du film sans affaiblir sa résistance physique.
- Par ailleurs, les compositions filmogènes tels que les vernis à ongles doivent posséder certaines caractéristiques rhéologiques, telle qu'une faible viscosité, pour faciliter leur application, notamment à l'aide d'un pinceau. Dans ce but, il est souhaitable que la composition n'épaississe pas dans le flacon au cours du temps et donc reste stable pendant toute la durée du stockage.
- Or, la demanderesse a constaté que des compositions comprenant une dispersion aqueuse de polyuréthane et certains agents plastifiants ont tendance à épaissir au cours du temps. Cette augmentation de la viscosité se produit plus particulièrement lors du stockage de la composition à température élevée, en particulier à partir de 45 °C, et notamment au bout d'une semaine, ou bien plusieurs mois à température ambiante. La composition ainsi épaissie est difficile à appliquer et ne permet pas d'obtenir le dépôt d'un film homogène et continu. Certains agents plastifiants conduisent même à la prise en masse dans le flacon rendant la composition inutilisable.
- Le but de la présente invention est de proposer une composition filmogène contenant une dispersion aqueuse de particules de polyuréthane présentant de bonnes propriétés de stabilité et/ou cosmétiques et ne présentant pas les inconvénients mentionnés ci-dessus.
- La demanderesse a découvert qu'une telle composition pouvait être obtenue en utilisant une sélection d'agents plastifiants particuliers. Ces agents plastifiants permettent de stocker la composition à température élevée, notamment à 45 °C,

pendant 2 semaines voire plusieurs mois, tout en évitant une augmentation importante de la viscosité de la composition au cours du temps. On obtient alors une composition filmogène présentant une viscosité stable dans le temps. La composition est facile à appliquer, notamment à l'aide d'un pinceau, sur le support à
5 traiter comme par exemple les matières kératiniques.

La présente invention a pour objet une composition filmogène comprenant au moins une dispersion aqueuse de particules de polyuréthane et au moins un agent plastifiant, caractérisée par le fait que l'agent plastifiant est choisi parmi les
10 solvants présentant un paramètre moyen de solubilité dH de HANSEN à 25°C tel que $dH \leq 8 \text{ (J/cm}^3\text{)}^{1/2}$.

De préférence, l'agent plastifiant selon l'invention peut présenter également un paramètre moyen de solubilité dP de HANSEN à 25°C tel que $dP \leq 3 \text{ (J/cm}^3\text{)}^{1/2}$, et
15 mieux $dP \leq 2 \text{ (J/cm}^3\text{)}^{1/2}$.

La définition des solvants dans l'espace de solubilité tridimensionnel selon HANSEN est décrite dans l'article de C. M. HANSEN : "The three dimensional solubility parameters" J. Paint Technol. 39, 105 (1967) ;
20

- dH caractérise les forces d'interactions spécifiques (type liaisons hydrogène, acide/base, donneur/accepteur, etc...);
- dP caractérise les forces d'interactions de DEBYE entre dipôles permanents
25 ainsi que les forces d'interactions de KEESOM entre dipôles induits et dipôles permanents.

Les paramètres dP et dH sont exprimés en $\text{(J/cm}^3\text{)}^{1/2}$.

30 Selon l'invention, l'agent plastifiant peut être choisi parmi les adipates de dialkyle en C3-C10, les phtalates de dialkyle en C3-C10, l'acétyl tributyle citrate.

De préférence, l'agent plastifiant peut être choisi parmi le phtalate de dibutyle ($dH = 7,5$; $dP = 2,8$), le phtalate de diéthyle-2-hexyle ($dH = 5,92$; $dP = 1,76$), l'adipate de diisopropyle ($dH = 7,76$; $dP = 2,98$), l'adipate de dibutyle ($dH = 7,28$; $dP = 2,63$), l'adipate de diéthyl-2-hexyle ($dH = 5,97$; $dP = 1,76$), l'acétyl citrate de tributyle ($dH = 7,09$; $dP = 1,75$).
35

Préférentiellement, l'agent plastifiant peut être choisi parmi le phtalate de dibutyle,
40 l'adipate de diisopropyle, l'adipate de diéthyl-2-hexyle, l'acétyl citrate de tributyle.

Le polyuréthane en dispersion aqueuse peut être un polyuréthane anionique. Ce caractère anionique est notamment dû à la présence de groupements à fonction acide carboxylique ou acide sulfonique dans le polymère.

- 5 Selon l'invention, on peut utiliser une ou plusieurs dispersions aqueuses d'un ou plusieurs polyuréthanes.

Le polyuréthane peut être choisi parmi les polyester-polyuréthanes et les poly-
10 éther-polyuréthanes, et de préférence parmi les polyester-polyuréthanes anioniques.

Avantageusement, la dispersion aqueuse de polyuréthane polyuréthane peut être
être choisi parmi celles dont la taille des particules de polyuréthane va de 2 à 100
nm et dont la dureté d'un film obtenu après séchage, durant 24 heures à 30 °C et
15 à 50 % d'humidité relative, d'une couche de 300 µm d'épaisseur (avant séchage)
d'une dispersion aqueuse à 28 % de matière sèche desdites particules de poly-
uréthane va de 15 à 300 secondes.

La dureté du film est mesurée selon la norme ASTM D-43-66, ou la norme NF-T
30-016 (octobre 1981), à l'aide d'un pendule de Persoz.

20 Comme polyuréthane utilisable selon l'invention, on peut notamment citer les polyester-polyuréthanes vendus sous les dénominations "AVALURE UR-405®",
"AVALURE UR-425®", "SANCURE 2060®" par la société SANNCOR et les poly-
éther-polyuréthanes vendus sous les dénominations "SANCURE 878®" par la so-
25 ciété SANNCOR, "NEOREZ R 970®" par la société ICI.

Selon l'invention, le polyuréthane peut être présent dans la composition en une
quantité allant de 3 à 50 % en poids par rapport au poids total de la composition,
et de préférence de 10 % à 35 % en poids.

30 Dans la composition selon l'invention, l'agent plastifiant peut être présent en une
quantité allant de 0,1 % à 20 % en poids, par rapport au poids total de la compo-
sition, et de préférence de 0,5 % à 10 % en poids.

35 Par ailleurs, la composition selon l'invention peut contenir des adjuvants couram-
ment utilisés dans les compositions cosmétiques, notamment topiques. On peut
citer à titre d'exemple d'adjuvants les colorants, les pigments, les nacres, les la-
ques, les agents anti-UV, les conservateurs, les agents épaississants, les tensio-
actifs, les cires, les parfums, les agents hydratants. Bien entendu, l'homme du
40 métier veillera à choisir ce ou ces éventuels adjuvants, et/ou leur quantité, de telle
manière que les propriétés avantageuses de la composition selon l'invention ne
soient pas, ou substantiellement pas, altérées par l'adjonction envisagée.

La composition selon l'invention peut être avantageusement utilisée pour le traitement, le maquillage, ou le soin des matières kératiniques et/ou des muqueuses selon la nature des actifs utilisés. La composition de maquillage peut être un vernis à ongles, un eye-liner, un mascara, un fond de teint, un anti-cernes, un fard à paupières ou à joues, un rouge à lèvres (laque à lèvres), ou bien encore une composition de maquillage du corps.

La composition selon l'invention peut avantageusement se présenter sous forme d'un vernis à ongles ou d'une composition de soin des ongles.

L'invention se rapporte aussi à un procédé de traitement cosmétique ou de maquillage des matières kératiniques, et notamment des ongles, et/ou des muqueuses, consistant à appliquer sur les matières kératiniques et/ou les muqueuses une composition telle que décrite précédemment.

L'invention a également pour objet l'utilisation d'au moins une dispersion aqueuse de particules de polyuréthane et d'au moins un agent plastifiant choisi parmi les solvants présentant un paramètre moyen de solubilité dH de HANSEN à 25°C tel que $dH \leq 8$ (J/cm³)⁴ tels que définis précédemment pour l'obtention d'une composition filmogène présentant une viscosité stable dans le temps et/ou facile à appliquer et/ou ne prenant pas en masse dans le temps.

On va maintenant donner des exemples illustrant la présente invention sans toutefois la limiter.

Exemples 1 à 8 : comparatifs

On a préparé 3 compositions (E1 à E3) selon l'invention et 5 compositions (E4 à E8) ne faisant pas partie de l'invention ayant la constitution suivante :

35	- Dispersion aqueuse de polyester-polyuréthane (AVALURE UR-405®)	35 g MA
	- plastifiant	3,5 g
	- eau	100 g
	qsp	

en utilisant différents plastifiants à une teneur de 10 % en poids par rapport au poids de polymère.

Ces compositions ont été stockées à 45 °C pendant 2 mois. On a mesuré la viscosité de chaque composition à quatre moments différents durant le stockage :

T0 = temps initial du mélange

T1 = T0 + 1 semaine

T2 = T0 + 1 mois

5 T3 = T0 + 2 mois

Les viscosités ont été mesurées à l'aide du viscosimètre BROOKFIELD RVTDV 2+ avec le mobile RV6 à une vitesse de rotation de 100 tours/minute, après 10 minutes de rotation du mobile, à 25 °C.

10

On a obtenu les résultats suivants, les viscosités étant exprimées en mPa. s.

Plastifiant	T0	T1	T2	T3
phtalate de di-butyle (E1)	864	989	1040	1440
adipate de di-éthylhexyle (E2)	659	682	611	605
acétyl citrate de tributyle (E3)	957	906	752	656
citrate de triéthyle * (E4)	224	trop épais	prise en masse	prise en masse
TPn Bu * (E5)	704	1280	4740	32300
lactate d'éthyle * (E6)	122	prise en masse	prise en masse	prise en masse
Arcosolv PTB* (E7)	330	595	1550	5440
Pn Bu * (E8)	650	7420	25100	trop épais

* plastifiants ne faisant pas partie de l'invention :

15

- citrate de triéthyle (dH = 13,39 ; dP = 4,3)
- TPn BU : n-butyl éther de tripropylène glycol (dH = 10,8 ; dP = 3,4)
- Arcosolv PTB : t-butyl éther de propylène glycol (dH = 12,52 ; dP = 4,37)
- Pn Bu : n-butyl éther de propylène glycol (dH = 12,6 ; dP = 4,4)

20

Les résultats obtenus montrent que les plastifiants selon l'invention permettent d'obtenir une composition filmogène, après stockage à 45 °C, ayant une viscosité au plus de 1380 mPa.s nettement inférieure aux viscosités obtenues pour les compositions comprenant un plastifiant ne faisant pas partie de la présente invention, ces dernières conduisant même à la formation de stick. Ainsi, seules les compositions selon l'invention restent fluides après le stockage et sont aptes à

25

être appliquées sur un support à traiter comme les ongles ou les lèvres ; elles présentent une viscosité stable dans le temps.

5 Exemples 9 à 13 : comparatifs

De la même façon qu'à l'exemple 1, on a préparé 4 compositions (E9 à E12) selon l'invention et 1 composition (E13) ne faisant pas partie de l'invention avec le même polymère filmogène en utilisant différents plastifiants à une teneur de 5 %
10 en poids (au lieu de 10 % en poids) par rapport au poids total de polymère.

On a obtenu les résultats de viscosité suivants exprimés en mPa.s :

Plastifiant	T0	T1	T2	T3
adipate de dii-sopropyle (E9)	573	531	598	685
phtalate de di-butyle (E10)	538	573	566	611
adipate de di-éthylhexyle (E11)	634	560	522	509
acétyl citrate de tributyle (E12)	819	653	579	614
citrate de triéthyle * (E13)	208	806	trop épais	prise en masse

15 * plastifiant ne faisant pas partie de l'invention

On a constaté que la composition comprenant le citrate de triéthyle (ne faisant pas partie de l'invention) conduit après 1 mois de stockage à 45 °C à la formation de stick tandis que les compositions selon l'invention restent fluides, même après
20 deux mois de stockage à 45 °C.

Exemples 14 à 17 : comparatifs

25 De la même façon qu'à l'exemple 1, on a préparé 3 compositions (E14 à E16) selon l'invention et 1 composition (E17) ne faisant pas partie de l'invention ayant la constitution suivante :

- dispersion aqueuse de polyester-polyuréthane (SANCURE 2060®) 27 g MA
- plastifiant 2,7 g
- eau qsp 100 g

5

la teneur en plastifiant étant de 10 % en poids par rapport au poids de polymère.

Les viscosités ont été mesurées à T0, T1 et T2 définis ci-dessus.

10 On a obtenu les résultats de viscosité suivants exprimés en mPa.s :

Plastifiant	T0	T1	T2
adipate de di-éthylhexyle (E14)	270	290	270
acétyl citrate de tributyle (E15)	300	300	330
adipate de diisopropyle (E16)	340	400	440
TPn Bu * (E17)	540	820	1010

* plastifiant ne faisant pas partie de l'invention

- 15 Les résultats obtenus montrent que les compositions selon l'invention ont une viscosité inférieure à celle de la composition comprenant le TPn Bu (ne faisant pas partie de l'invention). En outre, seules les compositions selon l'invention ont une viscosité stable au cours du temps. Ces compositions plus fluides sont donc plus facile à étaler par exemple avec un pinceau que la composition comprenant le
- 20 TPn Bu.

Exemples 18 à 21 : comparatifs

- 25 De la même façon qu'à l'exemple 1, on a préparé 3 compositions (E18 à E20) selon l'invention et 1 composition (E21) ne faisant pas partie de l'invention ayant la constitution suivante :

- 30
- dispersion aqueuse de polyéther-polyuréthane (SANCURE 878®) 34 g MA
 - plastifiant 3,4 g
 - eau qsp 100 g

la teneur en plastifiant étant de 10 % en poids par rapport au poids de polymère.

On a obtenu les résultats de viscosité suivants exprimés en mPa.s :

5

Plastifiant	T0	T1	T2	T3
adipate de di-éthylhexyle (E18)	830	580	760	690
acétyl citrate de tributyle (E19)	760	520	510	350
adipate de diisopropyle (E20)	790	470	410	430
TPn Bu * (E21)	1400	1000	1230	1410

* plastifiant ne faisant pas partie de l'invention

Les résultats obtenus montrent que les compositions selon l'invention ont une viscosité inférieure à celle de la composition comprenant le TPn Bu (ne faisant pas partie de l'invention).

10

Exemple 22 :

15

On a préparé une composition fluide à appliquer sur les lèvres ayant la constitution suivante :

20	- Dispersion aqueuse de polyester-polyuréthane (AVALURE UR-425®)	20 g MA
	- acétyl citrate de tributyle	1 g
	- pigments	4 g
	- épaississant	1 g
	- conservateurs	qs
25	- eau	qsp 100 g

On obtient une composition fluide qui présente une bonne stabilité au stockage et qui s'applique facilement sur les lèvres.

Exemple 23 :

On a préparé un vernis à ongles ayant la composition suivante :

5	- dispersion aqueuse de polyester-polyuréthane (AVALURE UR-405®)	30 g MA
	- adipate de diisopropyle	3 g
	- pigments	4 g
10	- épaississant	1 g
	- conservateurs	qs
	- eau	qsp 100 g

On obtient un vernis fluide présentant une viscosité stable au stockage et qui s'étale facilement sur les ongles

Exemple 24 :

On a préparé un eye-liner ayant la composition suivante :

	- dispersion aqueuse de polyéther-polyuréthane (SANCURE 878®)	25 g MA
	- adipate de 2-éthyl hexyle	1,25 g
25	- pigments	13 g
	- conservateurs	qs
	- eau	qsp 100 g

On obtient un vernis fluide présentant une bonne stabilité au stockage et qui s'applique facilement sur le bord des paupières.

REVENDICATIONS

1. Composition filmogène comprenant au moins une dispersion aqueuse de particules de polyuréthane et au moins un agent plastifiant, caractérisée par le fait que
5 l'agent plastifiant est choisi parmi les solvants présentant un paramètre moyen de solubilité dH de HANSEN à 25°C tel que $dH \leq 8 \text{ (J/cm}^3\text{)}^{1/2}$.
2. Composition selon la revendication 1, caractérisée par le fait que l'agent plastifiant présente un paramètre moyen de solubilité dP à 25°C tel que $dP \leq 3$
10 $(\text{J/cm}^3)^{1/2}$.
3. Composition selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait que l'agent plastifiant est choisi dans le groupe formé par les adipates de dialkyle en C3-C10, les phtalates de dialkyle en C3-C10, l'acétyl citrate de tributyle.
15
4. Composition selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait que l'agent plastifiant est choisi dans le groupe formé par le phtalate de dibutyle, le phtalate de diéthyle-2-hexyle, l'adipate de diisopropyle, l'adipate de
20 dibutyle, l'adipate de diéthyl-2-hexyle, l'acétyl citrate de tributyle.
5. Composition selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait que l'agent plastifiant est choisi parmi le phtalate de dibutyle, l'adipate de diisopropyle, l'adipate de diéthyl-2-hexyle, l'acétyl citrate de tributyle.
25
6. Composition selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait que le polyuréthane est un polyuréthane anionique.
7. Composition selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait que le polyuréthane est choisi parmi les polyester-polyuréthanes et les polyéther-polyuréthanes.
30
8. Composition selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait que le polyuréthane est un polyester-polyuréthane anionique.
35
9. Composition selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait que la taille des particules de polyuréthane va de 2 à 100 nm et que la dureté d'un film obtenu après séchage, durant 24 heures à 30 °C et à 50 % d'humidité relative, d'une couche de 300 µm d'épaisseur d'une dispersion
40 aqueuse à 28 % de matière sèche desdites particules de polyuréthane va de 15 à 300 secondes.

10. Composition selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait que le polyuréthane est présent en une quantité allant de 3 à 50 % en poids par rapport au poids total de la composition.
- 5 11. Composition selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait que ledit agent plastifiant est présent en une quantité allant de 0,1 % à 20 % en poids, de préférence de 0,5 % à 10 % en poids, par rapport au poids total de la composition.
- 10 12. Composition cosmétique selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait qu'elle contient en outre au moins un pigment et/ou un colorant.
13. Composition cosmétique selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait qu'elle contient en outre au moins un épaississant.
- 15 14. Composition selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait que la composition est une composition cosmétique.
- 20 15. Composition cosmétique selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée par le fait qu'elle se présente sous forme de composition de maquillage.
- 25 16. Procédé de traitement cosmétique des matières kératiniques et/ou des muqueuses, caractérisé par le fait que l'on applique sur les matières kératiniques et/ou sur les muqueuses une composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 15.
- 30 17. Procédé de maquillage des matières kératiniques et/ou des muqueuses, caractérisé par le fait que l'on applique sur les matières kératiniques et/ou sur les muqueuses une composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 15.
- 35 18. Utilisation d'au moins une dispersion aqueuse de particules de polyuréthane et d'au moins un agent plastifiant choisi parmi les solvants présentant un paramètre moyen de solubilité dH de HANSEN à 25°C tel que $dH \leq 8$ (J/cm³)^{1/2} tels que définis selon l'une quelconque des revendications 1 à 11 pour l'obtention d'une composition filmogène présentant une viscosité stable dans le temps et/ou facile à appliquer et/ou ne prenant pas en masse dans le temps.

INSTITUT NATIONAL
de la
PROPRIETE INDUSTRIELLE

RAPPORT DE RECHERCHE
PRELIMINAIRE
établi sur la base des dernières revendications
déposées avant le commencement de la recherche

N° d'enregistrement
national

FA 553907
FR 9802838

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS		Revendications concernées de la demande examinée
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	
D,X	EP 0 775 483 A (L'OREAL) 28 mai 1997 * page 4, ligne 52 - ligne 55; revendications 1,12,20,21 *	1,3,4,18
X	EP 0 613 676 A (REVLON) 7 septembre 1994 * page 5, ligne 12 - ligne 15; revendications 1,8 *	1,4,5
Y	DATABASE WPI Week 9125 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 91-183195 XP002089907 "Durable manicuring material - contg. nitrocellulose, with e.g. dimethyl phthalate, triethyl phthalate etc. , and ethanol solvent" & JP 03 112916 A (KANEBO), 14 mai 1991 * abrégé *	1,3,4,7
Y	EP 0 637 600 A (L'OREAL) 8 février 1995 * revendication 1 *	1,3,4,7
A	EP 0 740 933 A (L'OREAL) 6 novembre 1996 * revendication 1 *	1
A	EP 0 679 384 A (L'OREAL) 2 novembre 1995 * ligne 45 - ligne 60; revendication 1 *	1
Date d'achèvement de la recherche		Examineur
13 janvier 1999		Voyiazoglou, D
<p>CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES</p> <p>X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : pertinent à l'encontre d'au moins une revendication ou arrière-plan technologique général O : divulgation non-écrite P : document intercalaire</p> <p>T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant</p>		